

05.6

Люминесцентные свойства облученных электронами с энергией 12 MeV кристаллов шпинели $MgO \cdot 2.5Al_2O_3$

© И.Г. Мегела, В.Т. Маслюк, И.Ю. Роман, О.М. Поп[¶], Т.А. Виеру-Василица

Институт электронной физики НАН Украины, Ужгород, Украина

[¶] E-mail: pop.ksenja@gmail.com

Поступило в Редакцию 22 декабря 2020 г.

В окончательной редакции 17 февраля 2021 г.

Принято к публикации 19 февраля 2021 г.

Проведены исследования люминесцентных свойств нестехиометрической шпинели $MgO \cdot 2.5Al_2O_3$, облученной в прямом и рассеянном пучках электронов, ускоренных на микротроне М-30 энергией 12 MeV. Изучена кинетика затухания фосфоресценции, возникающей после облучения. Установлено, что она описывается гиперболой Беккереля с возрастанием показателя степени при увеличении дозы облучения. Исследованы закономерности изменения пика термолюминесценции в интервале 110–250°C с дозой облучения. Сделан вывод о возможности использования его для клинической и технологической дозиметрии импульсных электронных пучков.

Ключевые слова: ускоренные электроны, рассеянные электронные пучки, прямые электронные пучки, нестехиометрическая шпинель, фосфоресценция, термолюминесценция.

DOI: 10.21883/PJTF.2021.10.50968.18668

Термолюминесцентные методы уже несколько десятилетий широко используются для индивидуальной дозиметрии персонала и радиационного мониторинга внешней среды [1,2]. Для этой цели разработаны датчики на основе LiF, легированного Mg, Ti (промышленное обозначение TLD-100, российский аналог — ДТГ-4), а также на основе более чувствительного к излучению легированного Mg, Cu, P (промышленное обозначение TLD-100H). Кроме того, разработаны датчики на основе анионно-дефектного Al_2O_3 (TLD-500 K), а также менее используемые на основе CaF_2 и др. В продаже имеется ряд промышленных считывателей информации из облученных датчиков. Помимо индивидуальной дозиметрии представляется привлекательным использование термолюминесцентных методов в клинической и технологической дозиметрии, в частности, для измерений неоднородности радиационных полей. Несомненным преимуществом термолюминесцентных методов является возможность измерений в импульсных радиационных полях, которые используются при лечении онкобольных с помощью электронных ускорителей, в то время как использование других методов из-за высоких значений пиковых доз затруднительно. Существенным недостатком термолюминесцентных дозиметров является ограниченный интервал измеряемых доз, что обусловлено влиянием образующихся при этом радиационных дефектов, изменяющих свойства использованных материалов. В связи с этим актуальным является поиск новых термолюминесцентных материалов, обладающих повышенной радиационной стойкостью. Ожидается, что одним из таких материалов может быть нестехиометрическая магниево-алюминиевая шпинель, которая обладает повышенной радиационной стойкостью даже при облучении большими дозами нейтронов [3–6].

В настоящей работе апробирована возможность использования термолюминесцентных датчиков из нестехиометрической шпинели $MgO \cdot 2.5Al_2O_3$ для измерения дозиметрических характеристик радиационных полей, сформированных из ускоренных на микротроне М-30 электронов.

Исследованы номинально чистые монокристаллы нестехиометрического состава $MgO \cdot 2.5Al_2O_3$ размером 8×5 mm с толщиной 0.5 mm, выращенные методом Вернейля в НИИ ОКК Харьковского института монокристаллов НАН Украины.

Облучение исследуемых образцов осуществлялось в двух вариантах. В первом варианте облучение проводилось в прямом пучке ускоренных электронов размером 8×15 mm с интенсивностью в интервале $5 \cdot 10^{12} - 10^{13} e/cm^2$. При таких высоких интенсивностях облучения наблюдался существенный ($\sim 200^\circ C$) нагрев образцов. Для обеспечения комнатной температуры облучаемых образцов осуществлялось их охлаждение парами принудительно испаряемого жидкого азота. Их температура контролировалась медь-константановой термопарой. Во втором варианте поле облучения формировалось рассеянием электронов на тонкой вольфрамовой фольге толщиной 0.1 mm на входе коллиматора, повышающего равномерность образованного поля (метод, используемый при облучении онкобольных [7]). Интенсивность флюенса электронов определялась путем измерения их тока цилиндром Фарадея с калиброванным входным отверстием. Неоднородность поля на месте установки образцов не превышала 0.5%, а облучение в рассеянном пучке не приводило к значимому нагреву образцов. Интегральный флюенс определялся предварительно откалиброванным проходным монитором вторичной эмиссии.

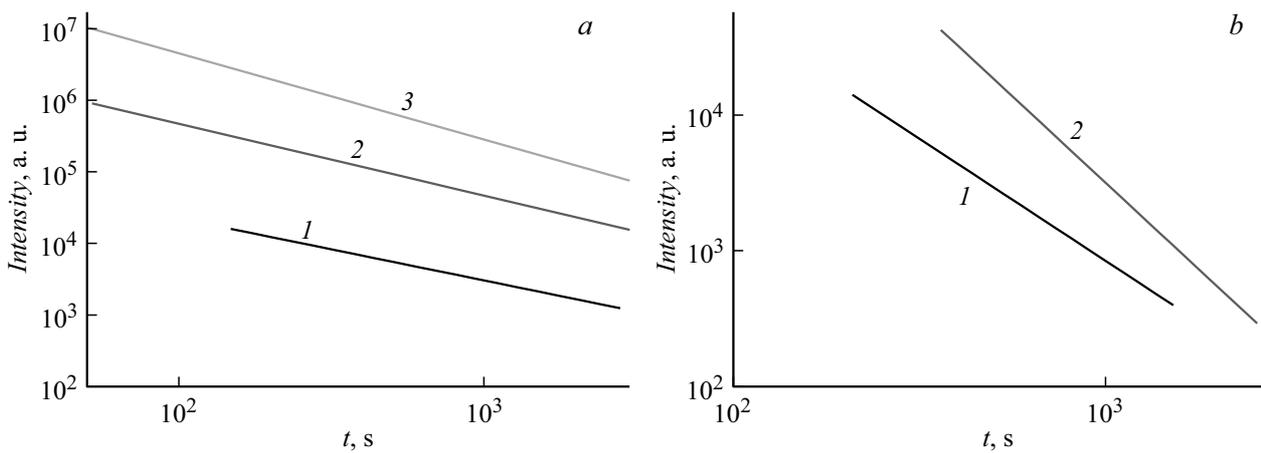


Рис. 1. Кинетика спада фосфоресценции в образцах, облученных в рассеянном пучке (плотность потока $6.7 \cdot 10^{10} e/cm^2 \cdot s$) с флюенсами до $5 \cdot 10^{14} e/cm^2$ (а), и в образцах, облученных в прямом пучке (плотность потока $\sim 2 \cdot 10^{13} e/cm^2 \cdot s$) с флюенсами до $5 \cdot 10^{16} e/cm^2$ (b). Флюенсы, e/cm^2 : а) 1 — $1 \cdot 10^{12}$, 2 — $2 \cdot 10^{14}$, 3 — $5 \cdot 10^{14}$; б) 1 — $1 \cdot 10^{16}$, 2 — $5 \cdot 10^{16}$.

Очевидно, что в обоих случаях облучение электронами сопровождалось облучением неизбежным тормозным излучением, возникающим при взаимодействии электронов с рассеивающей фольгой и конструктивными элементами ускорителя. Как показано в работе [8], где нами проводилось облучение в аналогичных условиях, дополнительная эквивалентная доза за счет тормозного облучения на единичный флюенс электронов составляет $5.4 \cdot 10^{-11} Gy$.

После окончания облучения и технологического интервала ($\sim 100 s$) в исследуемых образцах измерялась интенсивность фосфоресценции, которая, как нами было обнаружено, возникает после облучения как в рассеянном, так и в прямом пучке. Измерения кривых термолюминесценции (ТСЛ) при нагреве образцов со скоростью $0.5^\circ C/s$ до $300^\circ C$ проводились после полного затухания фосфоресценции. Измерение выходов фосфоресценции и термолюминесценции осуществлялось фотоэлектронным умножителем ФЭУ-106 в режиме счета фотонов.

Кинетика изменения выхода фосфоресценции со временем после облучения в рассеянном пучке (плотность потока $6.7 \cdot 10^{10} e/cm^2 \cdot s$) с флюенсами до $5 \cdot 10^{14} e/cm^2$ показана на рис. 1, а, в прямом пучке (плотность потока $\sim 2 \cdot 10^{13} e/cm^2 \cdot s$) с флюенсами до $5 \cdot 10^{16} e/cm^2$ — на рис. 1, б. Как хорошо известно (см., например, [9]), кинетика затухания фосфоресценции в кристаллофосфорах носит рекомбинационный характер и описывается полуэмпирической гиперболой Беккереля: $I = I_0/(1 + bt)^\alpha$, где показатель степени, как правило, $1 < \alpha < 2$. Тем не менее в некоторых экспериментальных работах, например в [10], наблюдались значения показателя степени α меньше единицы, для объяснения этого авторами была предложена модель, согласно которой воссоединение при рекомбинации локализованных носителей заряда осуществляется туннельными переходами без участия зонных состояний. В рамках этой модели увеличение концентрации активатора приводит к увеличению α ,

а увеличение дозы облучения — к уменьшению, что авторами и наблюдалось при облучении легированных кристаллов CaF_2 [10].

Для исследуемых нами образцов шпинели изменения показателя степени α в зависимости от флюенса электронов при различных значениях плотности потока приведены в таблице. Как видно из представленных данных, при начальных дозах облучения $1 \cdot 10^{12} e/cm^2$ значение α составляет 0.87, а при увеличении дозы облучения четко фиксируется рост значения показателя степени, который составляет 2.52 при $5 \cdot 10^{16} e/cm^2$. При этом влияния интенсивности облучения, как видно из приведенных данных, на величину показателя степени не наблюдается. Этим поведение фосфоресценции облученных кристаллов шпинели существенно отличается от кинетики изменения фосфоресценции в кристаллах LiF , Al_2O_3 , которые облучались нами аналогичным образом [8,11], где наблюдалось противоположное явление — уменьшение показателя степени при увеличении дозы облучения. Различия поведения показателя степени в исследуемых образцах шпинели и образцах LiF , Al_2O_3 [8,11] можно объяснить следующим образом. Помимо образования локализованных носителей заряда на ловушках в процессе облучения за счет ионизации происходят также упругие столкновения ускоренных электронов с атомами среды, приводящие к образованию радиационных дефектов типа смещенных атомов. Радиационные дефекты в общем случае могут быть как центрами безызлучательной рекомбинации, так и новыми центрами излучательной рекомбинации. Таким образом, существенное различие поведения показателя степени гиперболы Беккереля при облучении кристаллов LiF , Al_2O_3 и нестехиометрической шпинели можно объяснить тем, что радиационные дефекты в образцах кристаллов LiF и Al_2O_3 являются преимущественно центрами безызлучательной рекомбинации (эквивалентно уменьшению концентрации активатора), а в образ-

Изменения показателя степени гиперболы Беккереля в зависимости от флюенса электронов

$\Phi, e/cm^2$	Плотность потока, $e/cm^2 \cdot s$	Показатель степени
$1 \cdot 10^{12}$	$\sim 6.7 \cdot 10^{10}$	0.87
$2 \cdot 10^{14}$	$\sim 6.7 \cdot 10^{10}$	0.94
$5 \cdot 10^{14}$	$\sim 6.7 \cdot 10^{10}$	1.21
$1 \cdot 10^{16}$	$\sim 2 \cdot 10^{13}$	1.83
$5 \cdot 10^{16}$	$\sim 2 \cdot 10^{13}$	2.52

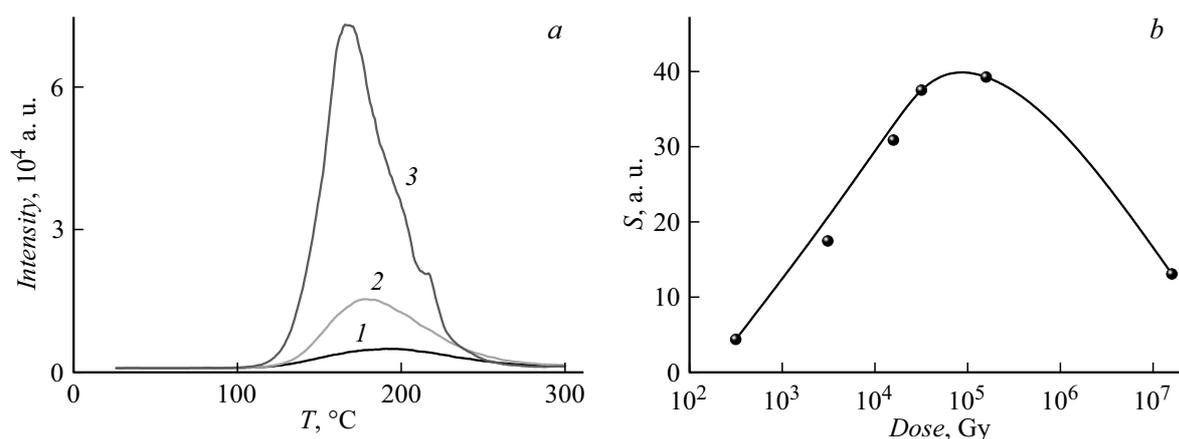


Рис. 2. *a* — характерные кривые термолюминесценции облученных образцов: 1 — $1 \cdot 10^{12}$ e/cm^2 , 2 — $1 \cdot 10^{13}$ e/cm^2 , 3 — $5 \cdot 10^{14}$ e/cm^2 ; *b* — зависимость выхода светосуммы термолюминесценции от дозы электронов.

цах нестехиометрической шпинели — дополнительными центрами излучательной рекомбинации (эквивалентно увеличению концентрации активатора). Это предположение хорошо согласуется с моделью туннельного механизма рекомбинации, предложенной в работе [10].

Характерные кривые ТСЛ образцов, облученных различными флюенсами, приведены на рис. 2, *a*, из которого видно, что основной пик термолюминесценции наблюдается в интервале температур 115–250 $^{\circ}C$. При этом с ростом дозы облучения возрастает как выход светосуммы пика, так и его максимум, что позволяет использовать его в качестве основного дозиметрического пика. Зависимость выхода светосуммы в этом пике от дозы облучения представлена на рис. 2, *b*. Из приведенных данных следует, что в образцах нестехиометрической шпинели $MgO \cdot 2.5Al_2O_3$ рост выхода ТСЛ наблюдается вплоть до $2 \cdot 10^5$ Gy, что значительно больше, чем в образцах LiF , Al_2O_3 [8,11], в которых насыщение выхода термолюминесценции наблюдалось при значении дозы в 1 kGy.

Таким образом, в работе впервые исследована кинетика затухания фосфоресценции, возникающая в результате облучения кристаллов шпинели $MgO \cdot 2.5Al_2O_3$ интенсивными пучками ускоренных электронов. Обнаружено, что с ростом дозы облучения возрастает показатель степени гиперболы, чем эти кристаллы отличаются от кристаллов лейкосапфира Al_2O_3 и LiF . Измеренные дозовые зависимости выхода термолюминесценции ука-

зывают на то, что кристаллы шпинели $MgO \cdot 2.5Al_2O_3$ являются значительно более радиационно стойкими относительно изменения люминесцентных свойств при облучении, что перспективно для разработки на их основе термолюминесцентных датчиков для клинической и технологической дозиметрии.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] B. Obryk, P. Bilski, K. Hodyr, P. Mika, in *2nd Int. Conf. on radiation and dosymetry in various fields of research (RAD 2014)*, ed. by G. Ristić (Faculty of Electronic Engineering, Niš, 2014), p. 207.
<http://www.rad2014.elfak.rs/php/download2.php?file=../prezentacije/Book%20of%20Abstracts%20RAD%202014.pdf>
- [2] M. Ranogajec-Komor, *Rad. Safety Management*, **2** (1), 2 (2003). DOI: 10.12950/rsm2002.2.2
- [3] T. Kim, C. Whang, T. Sakurai, *Rad. Eff. Def. Solids*, **156** (1-4), 317 (2001). <https://doi.org/10.1080/10420150108216912>
- [4] F.A. Garner, G.W. Hollenberg, F.D. Hobbs, J.L. Ryan, Z. Li, C.A. Black, R.C. Bradt, *J. Nucl. Mater.*, **212-215**, 1087 (1994). [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(94\)91000-6](https://doi.org/10.1016/0022-3115(94)91000-6)

- [5] S.P. Gokov, V.T. Gritsyna, S.S. Kochetov, V.I. Kasilov, Yu.G. Kazarinov, *Вопр. атомной науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение*, **93** (2), 43 (2009).
<http://dspace.nbuv.gov.ua/handle/123456789/96511>
- [6] Ю.Г. Казаринов, В.Т. Грицына, В.А. Кобяков, К.Е. Сикафус, *Вопр. атомной науки и техники. Сер.: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение*, **81** (3), 53 (2002).
- [7] В.П. Ковалев, В.В. Гордеев, В.И. Исаев, В.П. Харин, *Мед. радиология*, **19** (12), 47 (1974).
- [8] V.T. Maslyuk, I.G. Megela, B. Obryk, T.O. Vieru-Vasilitsa, *Rad. Eff. Def. Solids*, **172** (9-10), 782 (2017).
<https://doi.org/10.1080/10420150.2017.1393425>
- [9] В.В. Антонов-Романовский, *Кинетика фотолюминесценции кристаллофосфоров* (Наука, М., 1966).
- [10] В.В. Полугрудов, И.В. Григоров, *ФТТ*, **46** (10), 1781 (2004).
- [11] V.T. Maslyuk, I.G. Megela, T.O. Okunieva, J.M. Pekar, V.J. Pekar, *Rad. Prot. Dosim.*, **162** (1-2), 34 (2014).
<https://doi.org/10.1093/rpd/ncu213>